

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

**ETHYLENIC COPOLYMER COMPOSITION FOR IMPACT RESISTANCE  
IMPROVER AND INCLUDES SAID COMPOSITION THERMOPLASTIC  
RESIN COMPOSITION WHICH**

**[耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物および該組成物を含む熱可塑性樹脂組成物]**

Moriya Satoru

UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE  
Washington, D.C. 06/2003

Translated by: Schreiber Translations, Inc.

**Bibliographic Fields**

**Document Identity**

(19) [Publication Office]

Japan Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document]

Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number of Unexamined Application]

Japan Unexamined Patent Publication Hei 11 - 228753

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

1999 August 24

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

1999 August 24

(54) [Title of Invention]

**ETHYLENIC COPOLYMER COMPOSITION FOR IMPACT RESISTANCE IMPROVER AND  
INCLUDES SAID COMPOSITION THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION WHICH**

(51) [International Patent Classification, 6th Edition]

C08L 23/08

C08K 3/00

6-Sep

C08L 23/10

101/00

[FI]

C08L 23/08

C08K 3/00

6-Sep

C08L 23/10

101/00

[Number of Claims]

[Form of Application]

OL

[Number of Pages in the Document]

8

[Request for Examination]

Not requested

(21) [Application Number]

Japan Patent Application Hei 10 - 28634

(22) [Application Date]

1998 February 10

(71) [Applicant]

[Identification Number]

5887

[Name]

**mitsui chemicals inc.**

[Address]

Tokyo Prefecture Chiyoda-ku Kasumigaseki 3-Chome 2-5

(72) [Inventor]

[Name]

Mori Ryoji

[Address]

Yamaguchi Prefecture Kuga-gun Waki-cho Waki 6-Chome 1-2 Mitsui Chemicals Inc.

(72) [Inventor]

[Name]

Moriya Satoru

[Address]

Yamaguchi Prefecture Kuga-gun Waki-cho Waki 6-Chome 1-2 Mitsui Chemicals Inc.

(74) [Attorney(s) Representing All Applicants]

[Patent Attorney]

[Name]

Suzuki Shunichiro

(57) [Abstract]

[Problems to be Solved by the Invention]

thermoplastic resin composition which is superior in balance of impact resistance and hardness is obtained, ethylenic copolymer composition for possible impact resistance improver is offered.

[Means to Solve the Problems]

[A ] ethylene and number of carbon atoms  $\alpha$  4 - 20 -olefin with copolymer, (b-1 ) density was a range of 0.86 - 0.90 g/cm<sup>3</sup>, (b-2 ) temperature of maximum peak position in endothermic curve where melt flow rate in 190 deg C, 2.16 kg load was a range of 0.05 - 50 g/10 min, measured due to (b-3 ) differential scanning calorimeter (Tm ( deg C )) with density (d (g/cm<sup>3</sup> )), which satisfies relationship which is displayed with Tm

[Claim(s)]

[Claim 1]

[A ] ethylene and number of carbon atoms  $\alpha$  4 - 20 -olefin with copolymer, (a-1 ) density is a range of 0.860 - 0.900 g/cm<sup>3</sup>,

(a-2 ) melt flow rate in 190 deg C, 2.16 kg load is a range of 0.05 - 50 g/10 min,

temperature of maximum peak position in endothermic curve which was measured due to (a-3 ) differential scanning calorimeter (Tm ( deg C )) with density (d (g/cm<sup>3</sup> )),

ethylenic copolymer composition for impact resistance improver which ethylene  $\alpha$  which satisfies relationship which is displayed with Tm

[Claim 2]

ethylenic copolymer composition which is stated in [G ] Claim 1 ; 1 - 40 parts by weight and,

thermoplastic resin composition which consists of thermoplastic resin; 99~60 parts by weight where [H ] modulus is 800 MPa or greater and makes feature.

[Claim 3]

The aforementioned [H ] thermoplastic resin, it is a propylene polymer where melt flow rate in 230 deg C, 2.16 kg load is a range of 0.1 - 200 g/10 min and thermoplastic resin composition which is stated in Claim 2 which is made feature.

[Description of the Invention]

[0001]

[Technological Field of Invention]

this invention is something regarding ethylenic copolymer composition for impact absorption and thermoplastic resin

composition which consists of said composition and thermoplastic resin.

[0002]

[Prior Art]

polyolefin, polyester, polyamide, polyacetal or other thermoplastic resin because it has possessed fabricability, chemical resistance, electrical property, mechanical property etc which is superior, is processed in injection molded article, hollow molded article, film, sheet and etc is used for various application.

But with application, impact resistance etc satisfactory there are times when you cannot say.

[0003]

low crystalline ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer or other modifier blending in for example thermoplastic resin impact resistance etc of molded article which consists of this kind of thermoplastic resin as method which improves, the method which it makes composition is known.

But with conventional modifier, with application balance of impact resistance and hardness is not good, was.

[0004]

You consider these inventors, to this kind of condition and result of diligent research, you use partial cross linking composition of ethylenic copolymer which consists of specific ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer and surface vinyl silane modified inorganic fine particle, as modifier of thermoplastic resin composition which is superior in balance of impact resistance and hardness by adding according to need, crystal nucleating agent, inorganic filler, is acquired discovering, this invention it reached to completion.

[0005]

[Objective]

this invention includes ethylenic copolymer composition and said composition for impact resistance improver and thermoplastic resin composition which is superior in balance of impact resistance and hardness is offered has made objective.

[0006]

[Gist of Invention]

As for ethylenic copolymer composition for impact resistance improver which relates to this invention, [A] ethylene and number of carbon atoms  $\alpha$  4 - 20 -olefin with copolymer, (a-1) density was a range of 0.860 - 0.900 g/cm<sup>3</sup>, (a-2) temperature of maximum peak position in endothermic curve where melt flow rate in 190 deg C, 2.16 kg load was a range of 0.05 - 50 g/10 min, measured due to (a-3) differential scanning calorimeter (Tm (deg C)) with density (d (g/cm<sup>3</sup>)),

ethylene  $\alpha$  which satisfies relationship which is displayed with Tm

[0007]

thermoplastic resin composition which relates to this invention [G] the aforementioned way ethylenic copolymer composition; consists of thermoplastic resin; 99~60 parts by weight where 1 - 40 parts by weight and [H] modulus are 800 MPa or greater, it has made feature.

[0008]

As for the aforementioned [H ] thermoplastic resin, it is a propylene polymer where melt flow rate in 230 deg C, 2.16 kg load is a range of 0.1 - 200 g/10 min, it is desirable.

[0009]

[Embodiment of the Invention]

You explain concretely below, concerning ethylenic copolymer composition for the impact resistance improver which relates to this invention and thermoplastic resin composition which includes said composition.

[0010]

ethylenic copolymer composition for impact resistance improver which relates to [ethylenic copolymer composition for impact resistance improver ] this invention, the ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer (A ) with, surface vinyl silane modified inorganic fine particle (B ) with, cross linking agent (C ) and cross linking auxiliary agent (D ) with, according to need crystal nucleating agent (E ) and consists of inorganic filler (F ).

[0011]

First you explain concerning each component which forms ethylenic copolymer composition for impact resistance improver which relates to this invention.

ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer (A )

ethylene  $\alpha$  which is used with this invention -olefin copolymer (A ) the  $\alpha$  of the ethylene and number of carbon atoms 4~20 -olefin is random copolymer.

[0012]

number of carbon atoms you can list 1-butene, 1- pentene, 1- hexene, 4- methyl -1- pentene, 1- octene, 1- decene, 1- dodecene, 1- tetradecene, 1- hexadecene, 1- octadecene, 1- eicosene etc here  $\alpha$  4 - 20 as -olefin.

[0013]

ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer with (A ), as for constituting unit which is led from ethylene, it exists at ratio of 55 - 99 weight %, preferably 65~98 weight %, more preferably 70~96 weight %, number of carbon atoms the  $\alpha$  of 4- 20 as for constituting unit which is led from -olefin exists at ratio of 1 -45 weight %, preferably 2~35 weight %, more preferably 4~30 weight % is desirable.

[0014]

ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer composition, in sample tube of 10 mm $\phi$  diameter copolymer of approximately 200 mg is decided  $^{13}\text{C}$ -nmr spectrum, it measures of sample which is melted in uniform in hexachlorobutadiene of 1 ml under measurement condition of measurement temperature 120 deg C, measurement frequency 25.05 MHz, spectral width 1500 Hz, pulse repeat time 4.2 s., pulse width 6  $\mu$  sec. by.

[0015]

This kind of ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer density is a range of 0.860 - 0.900 g/cm<sup>3</sup>, preferably 0.870~0.900 g/cm<sup>3</sup>, more preferably 0.870~0.895 g/cm<sup>3</sup>, temperature of maximum peak position in endothermic curve where it was desirable, melt flow rate (MFR ) in 190 deg C, 2.16 kg load is a range of 0.05 - 50 g/10 min, preferably 0.1~40 g/10 min, more preferably 1~20 g/10 min, was desirable, it measured due to differential scanning calorimeter (DSC ) (Tm ( deg C )) with density (d (g/cm<sup>3</sup> )),

T m < 4 0 0 $\times$ d - 2 5 0
Preferably T m < 4 5 0 $\times$ d - 2 9 7
more preferably T m < 5 0 0 $\times$ d - 3 4 4
particularly preferably T m < 5 5 0 $\times$ d - 3 9 1

So relationship which is shown is satisfied, it is desirable.

[0016]

Furthermore, regarding to this invention, density, MFR and T<sub>m</sub> are measured like below.

density

As for density (g/cm<sup>3</sup>), 1 hour thermal processing it did strand which is acquired at the time of MFR measurement with 2.16 kg load in 190 deg C with 120 deg C, 1 hour applied and to room temperature gradual cooling after doing, it measured with density gradient tube.

[0017]

MFR

MFR (g/10 min) is measured under condition of 190 deg C, 2.16 kg load in accordance with ASTM D1238-65T.

[0018]

T<sub>m</sub>

temperature (T<sub>m</sub> (deg C)) of maximum peak position of endothermic curve which was measured due to the DSC, it stuffs sample approximately 5 mg to aluminum pan and with 10 deg C per minute temperature rise does to 200 deg C, with 200 deg C 5 min after keeping, with 20 deg C per minute cooling it does to room temperature, when temperature rise doing next with 10 deg C per minute, endothermic curve it is furthermore sought.

Measurement used Perkin Elmer make DSC-7 type equipment.

[0019]

surface vinyl silane modified inorganic fine particle (B)

As for surface vinyl silane modified inorganic fine particle (B) which is used with this invention, surface of the inorganic fine particle being vinyl silane, is something which modified is done.

[0020]

As inorganic fine particle, you can list silica, alumina, magnesia or other oxide fine particle, sedimentary calcium carbonate, heavy calcium carbonate, magnesium carbonate or other carbonate fine particle, aluminum hydroxide, magnesium hydroxide or other hydroxide fine particle etc.

Among these, especially silica fine particle is desirable.

[0021]

In addition you can list vinyl alkoxysilane, vinyl acetoxysilane,  $\gamma$ -methacryloxy propylene alkoxysilane etc as vinyl silane.

amount of modification, 0.0001 - 1 g/cm<sup>2</sup> (inorganic fine particle surface area), is preferably 0.0001~0.8 g/cm<sup>2</sup> (inorganic fine particle surface area) with this kind of vinyl silane in relation to the above mentioned inorganic fine particle, it is desirable.

[0022]



Adopting known method, it does, modified, with vinyl silane of inorganic fine particle it is possible.

average particle diameter of surface vinyl silane modified inorganic fine particle (B) which is used with this invention is 80 - 300Å extent, it is desirable.

[0023]

In addition, with this invention 2 kinds or more it is possible to jointly use the surface vinyl silane modified inorganic fine particle (B).

When this kind of surface vinyl silane modified inorganic fine particle (B) is included, hardness and impact resistance of the composition it can improve simultaneously.

[0024]

cross linking agent (C)

organic peroxide is used as cross linking agent which is used with this invention.

Concretely, 2 and 5 -dimethyl-2, 5-di you can list (t-butyl peroxy) hexane, 2, 5-dimethyl-2, 5-di (t-butyl peroxy) hexyne-3, 1, 3-bis (t-butyl peroxy isopropyl) benzene etc, among these, 2 and 5 -dimethyl-2, 5-di (t-butyl peroxy) hexane is desirable.

[0025]

cross linking auxiliary agent (D)

You can list for example sulfur, p-quinone dioxime, p, p'-dibenzoyl quinone dioxime, N-methyl-N-4-dinitrosoaniline, nitrobenzene, diphenyl guanidine, trimethylolpropane-N,N'-m-phenylene bismaleimide or other peroxy compound, divinyl benzene, triallyl cyanurate, ethyleneglycol dimethacrylate, diethylene glycol dimethacrylate, polyethylene glycol dimethacrylate, trimethylolpropane trimethacrylate, allyl methacrylate or other polyfunctional methacrylate monomer, vinyl butyrate, vinyl stearate or other polyfunctional vinyl monomer as cross linking auxiliary agent which is used with this invention, among these, divinyl benzene is desirable.

[0026]

crystal nucleating agent (E)

It is used without various crystal nucleating agent according to need crystal nucleating agent may be included by ethylenic copolymer composition which relates to this invention, as crystal nucleating agent until recently is known especially being restricted.

As desirable crystal nucleating agent, it is possible even among them to illustrate crystal nucleating agent which is listed on description below.

[0027]

[Chemical Formula 1]



[0029]

[0030]

[0031]

9

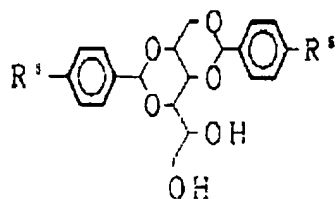
[0032]

Concretely, sodium-bis (4 -t-butyl phenyl ) phosphate, sodium-bis (4 -methylphenyl ) phosphate, sodium-bis (4 -ethyl phenyl ) phosphate, sodium-bis (4 -i-propyl phenyl ) phosphate, sodium-bis (4 -t-octyl phenyl ) phosphate, potassium-bis (4 -t-butyl phenyl ) phosphate, calcium-bis (4 -t-butyl phenyl ) phosphate, magnesium-bis (4 -t-butyl phenyl ) phosphate, lithium-bis (4 -t-butyl phenyl ) phosphate, aluminum-bis (4 -t-butyl phenyl ) phosphate and it is possible to illustrate blend of these 2 kinds or more.

Especially sodium-bis (4 -t-butyl phenyl ) phosphate is desirable.

[0033]

[Chemical Formula 3]



[0034]

(In Formula, R<sup>5</sup> is hydrocarbon group of hydrogen or carbon number 1~10. ) concretely, 1, 3, 2 and 4 -dibenzylidene sorbitol, 1, 3- benzilidene-2, 4- p- methyl benzilidene sorbitol, 1, 3- benzilidene-2, 4- p- ethyl benzilidene sorbitol, 1, 3- p- methyl benzilidene-2, 4- benzilidene sorbitol, 1, 3- p- ethyl benzilidene-2, 4- benzilidene sorbitol, 1, 3- p- methyl benzilidene-2, 4- p- ethyl benzilidene sorbitol, 1, 3- p- ethyl benzilidene-2, 4- p- methyl benzilidene sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (p- methyl benzilidene ) sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (p- ethyl benzilidene ) sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (p- n- propyl benzilidene ) sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (p- i-propyl benzilidene ) sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (p- n- butyl benzilidene ) sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (p- s-butyl benzilidene ) sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (p- t-butyl benzilidene ) sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (2' and 4' -dimethyl benzilidene ) sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (p- methoxy benzilidene ) sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (p- ethoxy benzilidene ) sorbitol, 1, 3- benzilidene -2- 4- p- chloro benzilidene sorbitol, 1, 3- p- chloro benzilidene-2, 4- benzilidene sorbitol, 1, 3- p- chloro benzilidene-2, 4- p- methyl benzilidene sorbitol, 1, 3- p- chloro benzilidene-2, 4- p- ethyl benzilidene sorbitol, 1, 3- p- methyl benzilidene-2, 4- p- chloro benzilidene sorbitol, 1, 3- p- ethyl benzilidene-2, 4- p- chloro benzilidene sorbitol and 1, 3, 2 and 4 -di be able to illustrate blend of (p- chloro benzilidene ) sorbitol and these 2 or more, Especially 1, 3, 2 and 4 -dibenzylidene sorbitol, 1, 3, 2, 4- di blend of (p- methyl benzilidene ) sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (p- ethyl benzilidene ) sorbitol, 1, 3- p- chloro benzilidene-2, 4- p- methyl benzilidene sorbitol, 1, 3, 2, 4- di (p- chloro benzilidene ) sorbitol and those 2 kinds or more is desirable.

[0035]

As other nucleating agent, be able to illustrate metal salt of aromatic carboxylic acid and aliphatic carboxylic acid, concretely, aluminum benzoate salt, p- t-butyl aluminum benzoate salt and sodium adipate, sodium thiophenecarboxylate, pyrrole sodium carboxylate etc can be listed.

[0036]

inorganic filler (F )

In addition, with ethylenic copolymer composition which relates to this invention, it is possible to include inorganic filler other than according to need the aforementioned vinyl silane modified inorganic fine particle.

[0037]

As inorganic filler, concretely, fine powder talc, kaolinite (DANA 71.1.1.2 ), calcined clay, pyrophyllite, sericite

(DANA 71.2.2a.1 ), wallacenite or other natural silicic acid or silicate, sedimentary calcium carbonate, heavy calcium carbonate, magnesium carbonate or other carbonate, aluminum hydroxide, magnesium hydroxide or other hydroxide, zinc oxide, zinc white, magnesium oxide or other oxide, hydrated silicic acid calcium, hydrated silicic acid aluminum, hydrated silicic acid, anhydrous silicic acid or other synthetic silicic acid or the silicate or other powder filler, mica or other flake filler, basic magnesium sulfate whisker, magnesium titanate whisker, aluminum borate whisker, sepiolite (DANA 74.3.1b.1 ), PMF (process ed Mineral Fiber ), zonotrite, potassium titanate, elestadite or other fiber filler, glass balloon, fly ash balloon or other balloon filler etc can be used.

As description above 2 kinds or more it is possible to jointly use inorganic filler.

[0038]

With this invention, it can use talc desirably even among these, can use fine powder talc of especially average particle diameter 0.01~10  $\mu$  m desirably.

Furthermore it can measure average particle diameter of talc, with liquid phase settling method.

[0039]

In addition inorganic filler, especially talc which is used with this invention may be done surface treatment beforehand even with untreated.

As this surface treatment, concretely, you can list chemical or physical treatment which uses silane coupling agent, higher aliphatic acid, aliphatic acid metal salt, unsaturated organic acid, organotitanate, resin acid, polyethylene glycol or other treatment agent.

[0040]

In addition with this invention, with this kind of inorganic filler, it is possible also to use high styrene, lignin, reclaimed rubber or other organic filler.

Manufacturing ethylenic copolymer composition for impact resistance improver

As for ethylenic copolymer composition for impact resistance improver which relates to this invention, formed it is from (A ) ethylene  $\alpha$  -olefin copolymer; 100 parts by weight and (B ) surface vinyl silane modified inorganic fine particle; 5~20 parts by weight, preferably 5~18 parts by weight and (C ) cross linking agent; 0.01~1 part by weight, preferably 0.01~0.8 parts by weight and (D ) cross linking auxiliary agent; 0.01~1 part by weight, preferably 0.01~0.8 parts by weight.

[0041]

In addition, crystal nucleating agent (E ) and/or (F ) inorganic filler may be included by ethylenic copolymer composition for this kind of impact resistance improver.

(E ) crystal nucleating agent 0 - 5 parts by weight, preferably 0.01~3 parts by weight, furthermore is included at quantity of preferably 0.01~3 parts by weight in relation to (A ) ethylene  $\alpha$  -olefin copolymer; 100 parts by weight, it is desirable, (F ) inorganic filler 0 - 10 parts by weight, preferably 1~8 parts by weight, furthermore is included at quantity of preferably 1~5 parts by weight in relation to (A ) ethylene  $\alpha$  -olefin copolymer; 100 parts by weight, it is desirable.

[0042]

In range which does not impair objective of this invention, anti weathering agent stabilizer, heat resistant stabilizer, antistatic agent, anti slip agent, anti blocking agent, anti fog agent, lubricant, pigment, dye, plasticizer, antioxidant, hydrochloric acid absorbent, antioxidant or other additive to ethylenic copolymer composition of this invention, may be combined according to need.

In addition, gist of this invention if it does not deviate, trace to blend it is possible other synthetic resin.

[0043]

Adopting known method, produces ethylenic copolymer composition of this invention, to be possible, it can produce like below for example.

First, in ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer, it adds surface vinyl silane modified inorganic fine particle which swelling is done with acetone or other polar solvent, melt mixing does with 230 deg C, ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer micro dispersing does surface vinyl silane modified inorganic fine particle, in.

Unless this time acetone or other polar solvent is used, inorganic fine particle coheres, becomes difficult to disperse is.

[0044]

Next, ethylene  $\alpha$  which inorganic fine particle disperses in  $\alpha$ -olefin copolymer, it adds the cross linking agent and cross linking auxiliary agent, melt mixing does again with 230 deg C, inorganic fine particle and ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer can produce ethylenic copolymer composition for the impact resistant improver which cross linking is done.

[0045]

It can combine this kind of ethylenic copolymer composition, to various thermoplastic resin as one for impact resistance improver.

impact resistance, bending resistance or other thermoplastic resin composition which is improved is acquired by combining ethylenic copolymer composition of this invention to thermoplastic resin.

[0046]

[thermoplastic resin composition] Next, you explain concerning thermoplastic resin composition which relates to this invention.

thermoplastic resin composition which relates to this invention, (G) the aforementioned ethylenic copolymer composition; is formed from 1 - 40 parts by weight, preferably 5~35 parts by weight and the (H) thermoplastic resin; 99~60 parts by weight, preferably 95~65 parts by weight.

[0047]

(H) thermoplastic resin

As thermoplastic resin, it can use thermoplastic resin where modulus is 800 MPa or greater, the for example polyolefin, polyamide, polyester and polyacetal or other crystalline thermoplastic resin, polystyrene, acrylonitrile-butadiene-styrene copolymer (ABS), can use polycarbonate, polyphenylene oxide or other noncrystalline thermoplastic resin.

[0048]

As polyolefin, polyethylene, polypropylene, poly 1-butene, polymethylpentene, poly methyl butene or other olefin homopolymer, propylene ethylene random copolymer or other olefin copolymer etc is listed, it is possible, the polyethylene, polypropylene, poly 1-butene is desirable.

[0049]

As polyester, polyethylene terephthalate, polyethylene naphthalate, polybutylene terephthalate or other aromatic type polyester, polycaprolactone, polyhydroxybutyrate etc is listed, it is possible, the polyethylene terephthalate especially is desirable.

[0050]

As polyamide, nylon-6, nylon-66, nylon-10, nylon-12, nylon-46 or other aliphatic polyamide, aromatic dicarboxylic acid and aromatic polyamide etc which is produced are listed from aliphatic diamine, it is possible, nylon-6 especially is desirable.

[0051]

As polyacetal, poly formaldehyde (polyoxymethylene), poly acetaldehyde, Polypyrrolidone aldehyde and poly butyl aldehyde etc are listed, it is possible, poly formaldehyde especially is desirable.

[0052]

polystyrene is good even with homopolymer of styrene, styrene and the acrylonitrile, methyl methacrylate,  $\alpha$ -methylstyrene is good even with copolymer.

[0053]

As ABS, it contains constituting unit which is induced from acrylonitrile at quantity of 20 - 35 mole %, it contains constituting unit which is induced from butadiene at quantity of 20 - 30 mole %, it can use those which contain constituting unit which is induced from styrene at the quantity of 40 - 60 mole % desirably.

[0054]

As polycarbonate, those which are acquired from bis (4 -hydroxyphenyl) methane, 1, 1-bis (4 -hydroxyphenyl) ethane, 2, 2-bis (4 -hydroxyphenyl) propane, 2, 2-bis (4 -hydroxyphenyl) butane etc are listed, it is possible, 2 and 2-bis polycarbonate which is acquired from (4 -hydroxyphenyl) propane especially is desirable.

[0055]

As polyphenylene oxide, poly (2 and 6 -dimethyl-1, 4- phenylene oxide) is used, it is desirable.

In these thermoplastic resin, polyolefin is desirable, polymer which designates the polypropylene as main component is more desirable, melt flow rate in especially 230 deg C, 2.16 kg load, propylene polymer which is 0.1 - 200 g/10 min is desirable.

[0056]

As description above it is possible to use thermoplastic resin, with alone, 2 kinds or more combining, to use it is possible.

Furthermore with the above mentioned thermoplastic resin, making use of thermoplastic resin other than description above it is good.

[0057]

In range which does not impair objective of this invention, crystal nucleating agent, inorganic filler, weather resistant stabilizer, heat resistant stabilizer, antistatic agent, anti slip agent, anti blocking agent, anti fog agent, lubricant, pigment, dye, plasticizer, antioxidant, hydrochloric acid absorbent, antioxidant or other additive to thermoplastic resin composition of this invention, may be combined, the according to need.

In addition, gist of this invention if it does not deviate, other synthetic resin may be done trace blend.

[0058]

Adopting known method, produces thermoplastic resin composition of this invention, to be possible, melt mixing it does for example ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer (A) with, surface vinyl silane modified inorganic fine particle (B) with, cross linking agent (C) and cross linking auxiliary agent (D) with, thermoplastic resin (H) with, according to need crystal nucleating agent (E) and inorganic filler (F), making use of extruder, kneader etc it is acquired by.

[0059]

Especially, with this invention, ethylene  $\alpha$ -olefin copolymer (A) with, surface vinyl silane modified inorganic fine particle (B) with, cross linking agent (C) and cross linking auxiliary agent (D) with, according to need crystal nucleating agent (E) and inorganic filler (F) it manufactures empty ethylenic copolymer composition (G) with melt mixing, next said ethylenic copolymer composition (G) with thermoplastic resin (H) blends, manufactures the thermoplastic resin composition is desirable.

[0060]

[Effects of the Invention]

As for ethylene type polymer composition which relates to this invention, thermoplastic resin composition which is superior in balance of impact resistance and hardness it is combined with, is acquired in thermoplastic resin.

[0061]

thermoplastic resin composition which relates to this invention is superior in balance of impact resistance and hardness.

[0062]

[Working Example(s)]

this invention furthermore is explained concretely below, on basis of Working Example, but this invention is not something which is limited in these Working Example.

[0063]

Measurement of property of composition did furthermore, in this specification like below.

flexural modulus (FM)

Conforming to ASTM C790, it measured under condition of span 51 mm, flexing rate 20 mm/min making use of test piece of thickness 1/8 inch.

[0064]

Izod impact test (IZ)

Conforming to ASTM D256, it measured with 23 deg C making use of the test piece (rear notch) of thickness 1/4 inch.

[0065]

Rockwell hardness (HR)

Conforming to ASTM D785, it measured making use of rectangular plate of the thickness 2 mm X vertical 120 mm

X side 130 mm.

[0066]

[Working Example 1]

melt flow rate (MFR<sub>190</sub>) density in 0.886 g/cm<sup>3</sup>, 190 deg C, 2.16 kg load surface vinyl silane modified silica fine particle (particle diameter: 100Å, vinyl amount of silane: 0.3 g/cm<sup>2</sup> (silica fine particle surface area)) 10 parts by weight and, 2 and 5 -dimethyl-2, 5-di (t- butyl peroxy) hexane 0.05 parts by weight and divinyl benzene 10 parts by weight were combined ethylene butene copolymer where the temperature (T<sub>m</sub>) of maximum peak position in endothermic curve which was measured due to 4 g/10 min, differential scanning calorimeter is 71.8 deg C (A-1) in relation to 100 parts by weight, ethylene butene copolymer composition (E-1) was manufactured with extruder by melt mixing doing with 230 deg C.

[0067]

ethylene butene copolymer composition which it acquires (G-1) 20 parts by weight and melt flow rate (MFR<sub>230</sub>) in 230 deg C, 2.16 kg load, with 10 g/10 min, quantity of 64 deg C decane soluble component quantity of 0.4 weight %, 64 deg C decane insoluble component the pentad isotacticity (mmmm content) of 99.6 weight %, 64 deg C decane insoluble component 0.982 homopolypropylene which is (H-1); kneading 80 parts by weight, thermoplastic resin composition was manufactured, after forming, flexural modulus, Izod impact test, Rockwell hardness was measured concerning molded article which is acquired.

Result is shown in Table 1.

[0068]

[Working Example 2]

In Working Example 1, in place of ethylene butene copolymer (A-1), melt flow rate (MFR<sub>190</sub>) density in 0.887 g/cm<sup>3</sup>, 190 deg C, 2.16 kg load other than using ethylene octene copolymer (A-2) where temperature (T<sub>m</sub>) of the maximum peak position in endothermic curve which was measured due to 4 g/10 min, differential scanning calorimeter is 83.8 deg C, ethylene octene copolymer composition (G-2) was manufactured to similar to Working Example 1.

[0069]

propylene polymer composition which it acquires (G-2); 20 parts by weight and homopolypropylene (H-1) kneading 80 parts by weight, it manufactured thermoplastic resin composition, after forming, in same way as Working Example 1, it measured flexural modulus, Izod impact test, Rockwell hardness concerning molded article which is acquired.

Result is shown in Table 1.

[0070]

[Working Example 3]

homopolypropylene which is used with Working Example 1 (H-1); 40 parts by weight and melt flow rate (MFR<sub>230</sub>) in 230 deg C, 2.16 kg load quantity of 22 g/10 min, 64 deg C decane soluble component quantity of 10.8 weight %, 64 deg C decane insoluble component the pentad isotacticity (mmmm content) of 89.2 wt%, 64 deg C decane insoluble component 0.978 propylene block copolymer which is (H-2); 44 parts by weight and the ethylene octene copolymer composition which is manufactured with Working Example 2 (G-2); kneading 16 parts by weight, the thermoplastic resin composition was manufactured.



[0071]

In same way as Working Example 1, it formed concerning thermoplastic resin composition which it acquires, it measured flexural modulus, Izod impact test, Rockwell hardness concerning the molded article which is acquired.

Result is shown in Table 1.

[0072]

[Working Example 4]

homopolypropylene which is used with Working Example 1 (H-1 ); 40 parts by weight and melt flow rate (MFR<sub>230</sub>) in 230 deg C, 2.16 kg load quantity of 22 g/10 min, 64 deg C decane soluble component quantity of 10.8 weight %, 64 deg C decane insoluble component the pentad isotacticity (mmmm content ) of 89.2 wt%, 64 deg C decane insoluble component 0.978 propylene block copolymer which is (H-2 ); 44 parts by weight and the ethylene octene copolymer composition which is manufactured with Working Example 2 (G-2 ); 16 parts by weight and crystal nucleating agent (Na-2, 2'-methylene-bis (4 and 6 -di-t-butyl phenyl ) phosphate ); kneading 1 part by weight, thermoplastic resin composition was manufactured.

[0073]

In same way as Working Example 1, it formed concerning thermoplastic resin composition which it acquires, it measured flexural modulus, Izod impact test, Rockwell hardness concerning the molded article which is acquired.

Result is shown in Table 1.

[0074]

[Working Example 5]

homopolypropylene which is used with Working Example 1 (H-1 ); 40 parts by weight and melt flow rate (MFR<sub>230</sub>) in 230 deg C, 2.16 kg load quantity of 22 g/10 min, 64 deg C decane soluble component quantity of 10.8 weight %, 64 deg C decane insoluble component the pentad isotacticity (mmmm content ) of 89.2 wt%, 64 deg C decane insoluble component 0.978 propylene block copolymer which is (H-2 ); 44 parts by weight and the ethylene octene copolymer composition which is manufactured with Working Example 2 (G-2 ); 16 parts by weight and inorganic filler (talc ); kneading 2 parts by weight, thermoplastic resin composition was manufactured.

[0075]

In same way as Working Example 1, it formed concerning thermoplastic resin composition which it acquires, it measured flexural modulus, Izod impact test, Rockwell hardness concerning the molded article which is acquired.

Result is shown in Table 1.

[0076]

[Comparative Example 1]

ethylene butene copolymer which is used with Working Example 1 (A-1 ); 20 parts by weight and homopolypropylene which is used with Working Example 1 (H-1 ); kneading 80 parts by weight, it manufactured thermoplastic resin composition.

[0077]

In same way as Working Example 1, it formed concerning thermoplastic resin composition which it acquires, it measured flexural modulus, Izod impact test, Rockwell hardness concerning the molded article which is acquired.

Result is shown in Table 1.

[0078]

[Table 1]

表 1

(重量部)		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例 1
ブレンド原料	ホモポリプロピレン(H-1)	80	80	40	40	40	80
	プロピレンブロック重合体(H-2)			44	44	44	
	エチレン・ブテン共重合体組成物(G-1)	20					
	エチレン・ブテン共重合体(A-1) 100重量部						
	表面ビニルシラン変性シリカ 10重量部						
	架橋剤 0.05重量部						
	架橋助剤 0.1重量部						
	エチレン・オクテン共重合体組成物(G-2)	20	16	16	16		
	エチレン・オクテン共重合体(A-2) 100重量部						
	表面ビニルシラン変性シリカ 10重量部						
	架橋剤 0.05重量部						
	架橋助剤 0.1重量部						
結晶核剤					1		
無機充填剤 (タルク)						2	
エチレン・オクテン共重合体(A-2)							20
曲げ弾性率 (MPa)		1560	1580	1510	1560	1565	1540
アイソット衝撃強度 (J/m)		85	80	114	160	140	69
ロックウェル強度		90	89	87	89	90	88.5

架橋剤: 2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキサノ  
架橋助剤: ジビニルベンゼン

結晶核剤: Na-2, 2'-メチレンビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)フォスフェート

[Table 1; Translation]

1. Carried out example 1
2. Carried out example 2
3. Carried out example 3
4. Carried out example 4
5. Carried out example 5
6. Comparative example 1
7. Weight unit
8. Blend material
9. homopolypropylene (H-1)
10. propylene block copolymer (H-2)
11. ethylene butene copolymer composition (G-1)
12. ethylene butene copolymer (A-1) 100 weight unit

13. surface vinyl silane modified silica 10 weight unit
14. Cross-linking agent 0.05 weight unit
15. Cross-linking assistant agent 0.1 weight unit
16. ethylene octene copolymer composition (G-2)
17. ethylene octene copolymer (A-2) 100 weight unit
18. surface vinyl silane modified silica 10 weight unit
19. Cross-linking agent 0.05 weight unit
20. Cross-linking assistant agent 0.1 weight unit
21. crystal nucleating agent
22. inorganic filler (talc)
23. ethylene octene copolymer (A-2)
24. Bending modulus of elasticity
25. Izod shock strength
26. Rockwell strength
27. Cross-linking agent: 2, 5-dimethyl-2, 5-di(tert-butylbelloxy) hexane
28. crystal nucleating agent: Na-2, 2'-methylane-bis(4, 6-di-t-butylphenyl)phosphate
29. Cross-linking assistant agent: divinylbenzene

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-228753

(43)Date of publication of application : 24.08.1999

(51)Int.Cl.

C08L 23/08  
C08K 3/00  
C08K 9/06  
C08L 23/10  
C08L101/00

(21)Application number : 10-028634

(71)Applicant : MITSUI CHEM INC

(22)Date of filing : 10.02.1998

(72)Inventor : MORI RYOJI  
MORIYA SATORU

### (54) ETHYLENE COPOLYMER COMPOSITION FOR IMPACT MODIFIER AND THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION CONTAINING THIS COMPOSITION

#### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain an ethylene copolymer composition for impact modifiers which gives a thermoplastic resin composition having a good balance of impact resistance and hardness.

**SOLUTION:** The ethylene copolymer composition comprises [A] 100 pts.wt. ethylene/ $\alpha$ -olefin copolymer which is a copolymer of ethylene and an  $\alpha$ -olefin having a carbon number of from 4 to 20, has a density within the range of from 0.86 to 0.90 g/cm<sup>3</sup>, has a melt flow rate at 190° C with a load of 2.16 kg within the range of from 0.05 to 50 g/10 min and the temperature (Tm(° C)) and the density (d(g/cm<sup>3</sup>)) at the maximum peak position in an endothermic curve determined by a differential scanning calorimeter satisfy the formula: Tm<400×d-250, [B] from 5 to 20 pts.wt. surface vinyl silane-modified inorganic fine particle, [C] from 0.01 to 1 pt.wt. crosslinking agent, [D] from 0.01 to 1 pt.wt. crosslinking auxiliary, [E] from 0 to 5 pts.wt. crystal nucleating agent and [F] from 0 to 10 pts.wt. inorganic filler.

#### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-228753

(43) 公開日 平成11年(1999) 8月24日

(51) Int.Cl. <sup>8</sup>		識別記号	F I
C 0 8 L 23/08			C 0 8 L 23/08
C 0 8 K 3/00			C 0 8 K 3/00
9/06			9/06
C 0 8 L 23/10			C 0 8 L 23/10
101/00			101/00
審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 8 頁)			
(21) 出願番号	特願平10-28634		
(22) 出願日	平成10年(1998) 2月10日		
(71) 出願人	000005887 三井化学株式会社 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号		
(72) 発明者	森 亮 二 山口県玖珂郡和木町和木六丁目1番2号 三井化学株式会社内		
(72) 発明者	守 屋 悟 山口県玖珂郡和木町和木六丁目1番2号 三井化学株式会社内		
(74) 代理人	弁理士 鈴木 俊一郎		

(54) 【発明の名称】 耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物および該組成物を含む熱可塑性樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】耐衝撃性と硬度とのバランスに優れた熱可塑性樹脂組成物を得ることが可能な耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物を提供する。

【解決手段】 [A] エチレンと炭素原子数が4~20の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体であって、(b-1)密度が0.86~0.90 g/cm<sup>3</sup>の範囲にあり、(b-2)190℃, 2.16kg荷重におけるメルトフローレートが0.05~50 g/10分の範囲にあり、(b-3)示差走査型熱量計により測定した吸熱曲線における最大ピーク位置の温度 (T<sub>m</sub>(℃)) と密度 (d (g/cm<sup>3</sup>)) とが、 $T_m < 400 \times d - 250$  で表される関係を満たすエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体; 100重量部と、[B] 表面ビニルシラン変性無機微粒子; 5~20重量部と、[C] 架橋剤; 0.01~1重量部と、[D] 架橋助剤; 0.01~1重量部と、[E] 結晶核剤; 0~5重量部と、[F] 無機充填剤; 0~10重量部とからなる耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 [A] エチレンと炭素原子数が4～20の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体であって、(a-1)密度が0.860～0.900 g/cm<sup>3</sup>の範囲にあり、(a-2)190℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレートが0.05～50 g/10分の範囲にあり、(a-3)示差走査型熱量計により測定した吸熱曲線における最大ピーク位置の温度 (Tm(℃)) と密度 (d (g/cm<sup>3</sup>)) とが、

$$T_m < 400 \times d - 250$$

で表される関係を満たすエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体；100重量部と、

[B] 表面ビニルシラン変性無機微粒子；5～20重量部と、

[C] 架橋剤；0.01～1重量部と、

[D] 架橋助剤；0.01～1重量部と、

[E] 結晶核剤；0～5重量部と、

[F] 無機充填剤；0～10重量部とからなることを特徴とする耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物。

【請求項2】 [G] 請求項1に記載のエチレン系共重合体組成物；1～40重量部と、

[H] 弾性率が800MPa以上である熱可塑性樹脂；99～60重量部とからなることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物。

【請求項3】 前記 [H] 熱可塑性樹脂が、230℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレートが0.1～200 g/10分の範囲にあるプロピレン系重合体であることを特徴とする請求項2に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の技術分野】 本発明は、衝撃吸収用エチレン系共重合体組成物および該組成物と熱可塑性樹脂とからなる熱可塑性樹脂組成物に関するものである。

## 【0002】

【発明の技術的背景】 ポリオレフィン、ポリアステル、ポリアミド、ポリアセタールなどの熱可塑性樹脂は、優れた加工性、耐薬品性、電気的性質、機械的性質などを有しているため、射出成形品、中空成形品、フィルム、シートなどに加工され各種用途に用いられている。しかしながら用途によっては、耐衝撃性などが充分とはいえない場合がある。

【0003】 このような熱可塑性樹脂からなる成形体の耐衝撃性などを向上させる方法としては、たとえば熱可塑性樹脂に低結晶性エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体などの改質剤をブレンドして組成物とする方法が知られている。しかしながら従来の改質剤では、用途によっては耐衝撃性と硬度とのバランスが良くないことがあった。

【0004】 本発明者らは、このような状況に鑑み鋭意

研究した結果、特定のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体と表面ビニルシラン変性無機微粒子とからなるエチレン系共重合体の部分架橋組成物を熱可塑性樹脂の改質剤として使用し、必要に応じて、結晶核剤、無機充填剤を添加することにより、耐衝撃性と硬度とのバランスに優れた組成物が得られることを見出して、本発明を完成するに至った。

## 【0005】

【発明の目的】 本発明は、耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物および該組成物を含み耐衝撃性と硬度とのバランスに優れた熱可塑性樹脂組成物を提供することを目的としている。

## 【0006】

【発明の概要】 本発明に係る耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物は、[A] エチレンと炭素原子数が4～20の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体であって、(a-1)密度が0.860～0.900 g/cm<sup>3</sup>の範囲にあり、(a-2)190℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレートが0.05～50 g/10分の範囲にあり、(a-3)示差走査型熱量計により測定した吸熱曲線における最大ピーク位置の温度 (Tm(℃)) と密度 (d (g/cm<sup>3</sup>)) とが、

$$T_m < 400 \times d - 250$$

で表される関係を満たすエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体；100重量部と、[B] 表面ビニルシラン変性無機微粒子；5～20重量部と、[C] 架橋剤；0.01～1重量部と、[D] 架橋助剤；0.01～1重量部と、[E] 結晶核剤；0～5重量部と、[F] 無機充填剤；0～10重量部とからなることを特徴としている。

【0007】 本発明に係る熱可塑性樹脂組成物は、

[G] 前記のようなエチレン系共重合体組成物；1～40重量部と、[H] 弾性率が800MPa以上である熱可塑性樹脂；99～60重量部とからなることを特徴としている。

【0008】 前記 [H] 熱可塑性樹脂は、230℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレートが0.1～200 g/10分の範囲にあるプロピレン系重合体であることが好ましい。

## 【0009】

【発明の具体的説明】 以下、本発明に係る耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物および該組成物を含む熱可塑性樹脂組成物について具体的に説明する。

【0010】 【耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物】 本発明に係る耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体(A)と、表面ビニルシラン変性無機微粒子(B)と、架橋剤(C)および架橋助剤(D)と、必要に応じて結晶核剤(E)および無機充填剤(F)とからなる。

【0011】 まず本発明に係る耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物を形成する各成分について説明する。

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体(A)

本発明で使用されるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体(A)は、エチレンと炭素原子数4~20の $\alpha$ -オレフィンとのランダム共重合体である。

【0012】ここで炭素原子数が4~20の $\alpha$ -オレフィンとしては、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、1-エイコセンなどが挙げられる。

【0013】エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体(A)では、エチレンから導かれる構成単位は、55~99重量%、好ましくは65~98重量%、より好ましくは70~96重量%の割合で存在し、炭素原子数が4~20の $\alpha$ -オレフィンから導かれる構成単位は1~45重量%、好ましくは2~35重量%、より好ましくは4~30重量%の割合で存在することが望ましい。

【0014】エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体の組成は、10mmφの試料管中で約200mgの共重合体を1mlのヘキサクロロブタジエンに均一に溶解させた試料の $^{13}\text{C}$ -NMRスペクトルを、測定温度120℃、測定周波数25.05MHz、スペクトル幅1500Hz、パルス繰返し時間4.2sec.、パルス幅6 $\mu$ sec.の測定条件下で測定することによって、決定される。

【0015】このようなエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体は、密度が0.860~0.900g/cm<sup>3</sup>、好ましくは0.870~0.900g/cm<sup>3</sup>、より好ましくは0.870~0.895g/cm<sup>3</sup>の範囲にあることが望ましく、190℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレート

(MFR)が0.05~50g/10分、好ましくは0.1~40g/10分、より好ましくは1~20g/10分の範囲にあることが望ましく、示差走査型熱量計(DSC)により測定した吸熱曲線における最大ピーク位置の温度(Tm(℃))と密度(d(g/cm<sup>3</sup>))とが、

$$T_m < 400 \times d - 250$$

$$\text{好ましくは } T_m < 450 \times d - 297$$

$$\text{より好ましくは } T_m < 500 \times d - 344$$

$$\text{特に好ましくは } T_m < 550 \times d - 391$$

で示される関係を満たしていることが望ましい。

【0016】なお、本発明において密度、MFRおよびTmは以下のようにして測定される。

密度

密度(g/cm<sup>3</sup>)は、190℃における2.16kg荷重でのMFR測定時に得られるストランドを120℃で1時間熱処理し、1時間かけて室温まで徐冷したのち、密度勾配管で測定した。

【0017】MFR

MFR(g/10分)は、ASTM D1238-65Tに従い190℃、2.16kg荷重の条件下に測定される。

【0018】Tm

DSCにより測定した吸熱曲線の最大ピーク位置の温度

(Tm(℃))は、試料約5mgをアルミパンに詰め10℃/分で200℃まで昇温し、200℃で5分間保持したのち20℃/分で室温まで降温し、次いで10℃/分で昇温する際の吸熱曲線より求められる。測定は、パーキンエルマー社製DSC-7型装置を用いた。

【0019】表面ビニルシラン変性無機微粒子(B)

本発明で使用される表面ビニルシラン変性無機微粒子(B)は、無機微粒子の表面がビニルシランで変性されたものである。

【0020】無機微粒子としては、シリカ、アルミナ、マグネシアなどの酸化物微粒子、沈降性炭酸カルシウム、重質炭酸カルシウム、炭酸マグネシウムなどの炭酸塩微粒子、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウムなどの水酸化物微粒子などが挙げられる。これらのうち、とくにシリカ微粒子が好ましい。

【0021】またビニルシランとしては、ビニルアルコキシシラン、ビニルアセトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピレンアルコキシシランなどが挙げられる。このようなビニルシランによる変性量は、上記無機微粒子に対し、0.0001~1g/cm<sup>2</sup>(無機微粒子表面積)、好ましくは0.0001~0.8g/cm<sup>2</sup>(無機微粒子表面積)であることが望ましい。

【0022】無機微粒子のビニルシランによる変性は、公知の方法を採用して行うことができる。本発明で使用される表面ビニルシラン変性無機微粒子(B)の平均粒子径は80~300Å程度であることが望ましい。

【0023】また、本発明では表面ビニルシラン変性無機微粒子(B)を、2種以上併用してもよい。このような表面ビニルシラン変性無機微粒子(B)を含んでいると、組成物の硬度と耐衝撃性を同時に向上させることができる。

【0024】架橋剤(C)

本発明で使用する架橋剤としては、有機過酸化物が使用される。具体的には、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキサン、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキシン-3、1,3-ビス(tert-ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼンなどが挙げられ、これらのうち、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキサンが好ましい。

【0025】架橋助剤(D)

本発明で使用する架橋助剤としては、たとえば、硫黄、p-キノンジオキシム、p,p'-ジベンゾイルキノンジオキシム、N-メチル-N-4-ジニトロソアニリン、ニトロベンゼン、ジフェニルグアニジン、トリメチロールプロパン-N,N'- $\eta$ -フェニレンジマレイミドなどのペルオキシ系化合物、ジビニルベンゼン、トリアリルシアヌレート、エチレングリコールジメタクリレート、ジエチレングリコールジメタクリレート、ポリエチレングリコールジメタクリレート、トリメチロールプロパントリメタクリレート、アリルメタクリレートなどの多官能性メタクリレー

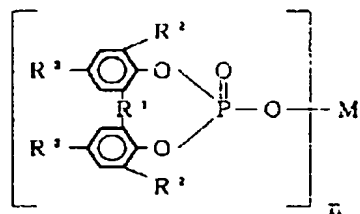
トモノマー、ビニルブチラート、ビニルスチレートなどの多官能性ビニルモノマーが挙げられ、これらのうち、ジビニルベンゼンが好ましい。

#### 【0026】結晶核剤(E)

本発明に係るエチレン系共重合体組成物には、必要に応じて結晶核剤が含まれていてもよく、結晶核剤としては従来知られている種々の結晶核剤が特に制限されことなく用いられる。中でも、下記に挙げる結晶核剤を好ましい結晶核剤として例示することができる。

#### 【0027】

##### 【化1】



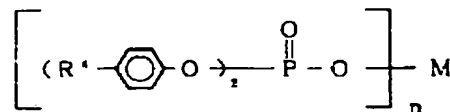
【0028】(式中、 $R^1$ は酸素、硫黄、もしくは炭素数1～10の炭化水素基であり、 $R^2$ 、 $R^3$ は水素もしくは炭素数1～10の炭化水素基であり、 $R^2$ 、 $R^3$ は同種であっても異種であってもよく、 $R^2$ 同士、 $R^3$ 同士または $R^2$ と $R^3$ が結合して環状となっていてよく、Mは、1～3価の金属原子であり、nは1～3の整数である。)

【0029】具体的には、ナトリウム-2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、リチウム-2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、リチウム-2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-2,2'-エチリデンビス(4-*i*-プロピル-6-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、リチウム-2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、リチウム-2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、カルシウム-ビス[2,2'-チオビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート]、カルシウム-ビス[2,2'-チオビス(4-エチル-6-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート]、カルシウム-ビス[2,2'-チオビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート]、マグネシウム-ビス[2,2'-チオビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート]、マグネシウム-ビス[2,2'-チオビス(4-*t*-オクチルフェニル) フォスフェート]、ナトリウム-2,2'-ブチリデンビス(4,6-ジ-メチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-2,2'-ブチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-2,2'-*t*-オクチルメチレンビス(4,6-ジ-メチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-2,2'-*t*-オクチルメチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、カルシウム-ビス(2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチ

ルフェニル) フォスフェート]、マグネシウム-ビス[2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート]、バリウム-ビス[2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート]、ナトリウム-2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム(4,4'-ジメチル-5,6'-ジ-*t*-ブチル-2,2'-ビフェニル) フォスフェート、カルシウム-ビス[(4,4'-ジメチル-6,6'-ジ-*t*-ブチル-2,2'-ビフェニル) フォスフェート]、ナトリウム-2,2'-エチリデンビス(4-*m*-ブチル-6-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-メチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-エチルフェニル) フォスフェート、カリウム-2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、カルシウム-ビス[2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート]、マグネシウム-ビス[2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート]、バリウム-ビス[2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート]、アルミニウム-トリス[2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート] およびアルミニウム-トリス[2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート] およびこれらの2個以上の混合物を例示することができる。特にナトリウム-2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル) フォスフェートが好ましい。

#### 【0030】

##### 【化2】



【0031】(式中、 $R^4$ は水素もしくは炭素数1～10の炭化水素基であり、Mは、1～3価の金属原子であり、nは1～3の整数である。)

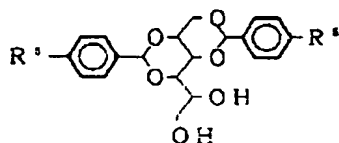
【0032】具体的には、ナトリウム-ビス(4-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-ビス(4-メチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-ビス(4-エチルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-ビス(4-*i*-プロピルフェニル) フォスフェート、ナトリウム-ビス(4-*t*-オクチルフェニル) フォスフェート、カリウム-ビス(4-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、カルシウム-ビス(4-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、マグネシウム-ビス(4-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、リチウム-ビス(4-*t*-ブチルフェニル) フォスフェート、アルミニウム-ビス(4-*t*-ブチルフェニル) フォスフェートおよびこれらの2種以上の混合物を例示することができる。特にナトリウム-ビス(4-*t*-ブチルフェ



ニル) フォスフェートが好ましい。

【0033】

【化3】



【0034】(式中、 $R^5$ は水素もしくは炭素数1~10の炭化水素基である。) 具体的には、1,3,2,4-ジベンジリデンソルビトール、1,3-ベンジリデン-2,4-p-メチルベンジリデンソルビトール、1,3-ベンジリデン-2,4-p-エチルベンジリデンソルビトール、1,3-p-メチルベンジリデン-2,4-ベンジリデンソルビトール、1,3-p-エチルベンジリデン-2,4-ベンジリデンソルビトール、1,3-p-メチルベンジリデンソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-メチルベンジリデン)ソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-エチルベンジリデン)ソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-n-プロピルベンジリデン)ソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-i-プロピルベンジリデン)ソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-n-ブチルベンジリデン)ソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-s-ブチルベンジリデン)ソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-t-ブチルベンジリデン)ソルビトール、1,3,2,4-ジ(2',4'-ジメチルベンジリデン)ソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-メトキシベンジリデン)ソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-エトキシベンジリデン)ソルビトール、1,3-ベンジリデン-2,4-p-クロルベンジリデンソルビトール、1,3-p-クロルベンジリデン-2,4-ベンジリデンソルビトール、1,3-p-クロルベンジリデン-2,4-p-メチルベンジリデンソルビトール、1,3-p-クロルベンジリデン-2,4-p-エチルベンジリデンソルビトール、1,3-p-メチルベンジリデン-2,4-p-クロルベンジリデンソルビトール、1,3-p-エチルベンジリデン-2,4-p-クロルベンジリデンソルビトールおよび1,3,2,4-ジ(p-クロルベンジリデン)ソルビトールおよびこれらの2個以上の混合物を例示でき、特に1,3,2,4-ジベンジリデンソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-メチルベンジリデン)ソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-エチルベンジリデン)ソルビトール、1,3-p-クロルベンジリデン-2,4-p-メチルベンジリデンソルビトール、1,3,2,4-ジ(p-クロルベンジリデン)ソルビトールおよびそれらの2種以上の混合物が好ましい。

【0035】その他の核剤としては、芳香族カルボン酸や脂肪族カルボン酸の金属塩を例示でき、具体的には、安息香酸アルミニウム塩、p-t-ブチル安息香酸アルミニウム塩やアジピン酸ナトリウム、チオフェネカルボン酸ナトリウム、ピローレカルボン酸ナトリウムなどを挙げられる。

【0036】無機充填剤(F)

また、本発明に係るエチレン系共重合体組成物では、必要に応じて前記ビニルシラン変性無機微粒子以外の無機充填剤を含んでいてもよい。

【0037】無機充填剤として、具体的には、微粉末タルク、カオリナイト、焼成クレー、パイロフィライト、セリサイト、ウォラスナイトなどの天然珪酸または珪酸塩、沈降性炭酸カルシウム、重質炭酸カルシウム、炭酸マグネシウムなどの炭酸塩、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウムなどの水酸化物、酸化亜鉛、亜鉛華、酸化マグネシウムなどの酸化物、含水珪酸カルシウム、含水珪酸アルミニウム、含水珪酸、無水珪酸などの合成珪酸または珪酸塩などの粉末状充填剤、マイカなどのフレーク状充填剤、塩基性硫酸マグネシウムウィスカー、チタン酸カルシウムウィスカー、ホウ酸アルミニウムウィスカー、セピオライト、PMF (Processed Mineral Fiber)、ゾノトライト、チタン酸カリ、エレスタダイトなどの繊維状充填剤、ガラスバルン、フライアッシュバルンなどのバルン状充填剤などを用いることができる。上記のような無機充填剤は、2種以上併用してもよい。

【0038】本発明では、これらのうちでもタルクが好ましく用いられ、特に平均粒径0.01~10 $\mu$ mの微粉末タルクが好ましく用いられる。なおタルクの平均粒径は、液相沈降方法によって測定することができる。

【0039】また本発明で用いられる無機充填剤、特にタルクは、無処理であっても予め表面処理されていてもよい。この表面処理としては、具体的には、シランカップリング剤、高級脂肪酸、脂肪酸金属塩、不飽和有機酸、有機チタネート、樹脂酸、ポリエチレングリコールなどの処理剤を用いる化学的または物理的処理が挙げられる。

【0040】また本発明では、このような無機充填剤とともに、ハイスチレン類、リグニン、再ゴムなどの有機充填剤を用いることもできる。

#### 耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物の調製

本発明に係る耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物は、(A)エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体；100重量部と、(B)表面ビニルシラン変性無機微粒子；5~20重量部、好ましくは5~18重量部と、(C)架橋剤；0.01~1重量部、好ましくは0.01~0.8重量部と、(D)架橋助剤；0.01~1重量部、好ましくは0.01~0.8重量部とから形成されている。

【0041】また、このような耐衝撃性改質材用エチレン系共重合体組成物には、結晶核剤(E)および/または(F)無機充填剤が含まれていてもよい。(E)結晶核剤は、(A)エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体；100重量部に対して、0~5重量部、好ましくは0.01~3重量部、さらに好ましくは0.01~3重量部の量で含まれていることが望ましく、(F)無機充填剤は、(A)エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体；100重量部に対して、0~10重量部、好ましくは1~8重量部、さらに好まし

くは1～5重量部の量で含まれていることが望ましい。

【0042】本発明のエチレン系共重合体組成物には、本発明の目的を損なわない範囲で、耐候性安定剤、耐熱安定剤、帯電防止剤、スリップ防止剤、アンチブロッキング剤、防曇剤、滑剤、顔料、染料、可塑剤、老化防止剤、塩酸吸収剤、酸化防止剤等の添加剤が必要に応じて配合されていてもよい。また、本発明の趣旨を逸脱しない限り他の合成樹脂を少量ブレンドすることができる。

【0043】本発明のエチレン系共重合体組成物は、公知の方法を採用して製造することができ、たとえば、以下のようにして製造することができる。まず、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体に、アセトンなどの極性溶媒で膨潤させた表面ビニルシラン変性無機微粒子を添加し、230℃で熔融混練して、表面ビニルシラン変性無機微粒子を、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体中に微分散させる。このときアセトンなどの極性溶媒を使用しないと、無機微粒子が凝集し、分散しにくくなることがある。

【0044】次に、無機微粒子が分散したエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体に、架橋剤および架橋助剤を添加し、再び230℃で熔融混練して、無機微粒子とエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体が架橋された耐衝撃改質材用エチレン系共重合体組成物を製造することができる。

【0045】このようなエチレン系共重合体組成物は、種々の熱可塑性樹脂に耐衝撃性改質材用として配合することができる。本発明のエチレン系共重合体組成物を熱可塑性樹脂に配合することにより、耐衝撃性、耐屈曲性などの改善された熱可塑性樹脂組成物が得られる。

【0046】〔熱可塑性樹脂組成物〕次に、本発明に係る熱可塑性樹脂組成物について説明する。本発明に係る熱可塑性樹脂組成物は、(G)前記エチレン系共重合体組成物；1～40重量部、好ましくは5～35重量部と、(H)熱可塑性樹脂；99～60重量部、好ましくは95～65重量部とから形成されている。

#### 【0047】(H)熱可塑性樹脂

熱可塑性樹脂としては、弾性率が800MPa以上である熱可塑性樹脂が用いられ、たとえばポリオレフィン、ポリアミド、ポリエステルおよびポリアセタールなどの結晶性熱可塑性樹脂、ポリスチレン、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体(ABS)、ポリカーボネート、ポリフェニレンオキサイドなどの非結晶性熱可塑性樹脂が用いられる。

【0048】ポリオレフィンとしては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ-1-ブテン、ポリメチルペンテン、ポリメチルブテンなどのオレフィン単重合体、プロピレン・エチレンランダム共重合体などのオレフィン共重合体などを挙げることができ、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ-1-ブテンが好ましい。

【0049】ポリエステルとしては、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレン

テレフタレートなどの芳香族系ポリエステル、ポリカプロラクトン、ポリヒドロキシブチレートなどを挙げることができ、ポリエチレンテレフタレートが特に好ましい。

【0050】ポリアミドとしては、ナイロン-6、ナイロン-66、ナイロン-10、ナイロン-12、ナイロン-46等の脂肪族ポリアミド、芳香族ジカルボン酸と脂肪族ジアミンより製造される芳香族ポリアミドなどを挙げることができ、ナイロン-6が特に好ましい。

【0051】ポリアセタールとしては、ポリホルムアルデヒド(ポリオキシメチレン)、ポリアセトアルデヒド、ポリプロピオンアルデヒド、ポリブチルアルデヒドなどを挙げることができ、ポリホルムアルデヒドが特に好ましい。

【0052】ポリスチレンは、スチレンの単重合体であってもよく、スチレンとアクリロニトリル、メタクリル酸メチル、 $\alpha$ -メチルスチレンとの二元共重合体であってもよい。

【0053】ABSとしては、アクリロニトリルから誘導される構成単位を20～35モル%の量で含有し、ブタジエンから誘導される構成単位を20～30モル%の量で含有し、スチレンから誘導される構成単位を40～60モル%の量で含有するものが好ましく用いられる。

【0054】ポリカーボネートとしては、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタンなどから得られるものを挙げることができ、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンから得られるポリカーボネートが特に好ましい。

【0055】ポリフェニレンオキシドとしては、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンオキシド)を用いることが好ましい。これらの熱可塑性樹脂のなかでは、ポリオレフィンが好ましく、ポリプロピレンを主体とした重合体がより好ましく、特に230℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレートが、0.1～200g/10分であるプロピレン系重合体が好ましい。

【0056】上記のような熱可塑性樹脂は、単独で用いてもよく、2種以上組み合わせ用いてもよい。さらに上記の熱可塑性樹脂とともに、上記以外の熱可塑性樹脂を用いてもよい。

【0057】本発明の熱可塑性樹脂組成物には、本発明の目的を損なわない範囲で、結晶核剤、無機充填剤、耐候安定剤、耐熱安定剤、帯電防止剤、スリップ防止剤、アンチブロッキング剤、防曇剤、滑剤、顔料、染料、可塑剤、老化防止剤、塩酸吸収剤、酸化防止剤などの添加剤が、必要に応じて配合されていてもよい。また、本発明の趣旨を逸脱しない限り、他の合成樹脂が少量ブレンドされていてもよい。

【0058】本発明の熱可塑性樹脂組成物は、公知の方

法を採用して製造することができ、たとえば、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体(A)と、表面ビニルシラン変性無機微粒子(B)と、架橋剤(C)および架橋助剤(D)と、熱可塑性樹脂(H)と、必要に応じて結晶核剤(E)および無機充填剤(F)とを、押出機、ニーダーなどを用いて熔融混練することによって得られる。

【0059】特に、本発明では、熔融混練によってエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体(A)と、表面ビニルシラン変性無機微粒子(B)と、架橋剤(C)および架橋助剤(D)と、必要に応じて結晶核剤(E)および無機充填剤(F)をからエチレン系共重合体組成物(G)を調製し、次に該エチレン系共重合体組成物(G)と熱可塑性樹脂(H)とをブレンドして、熱可塑性樹脂組成物を調製することが好ましい。

#### 【0060】

【発明の効果】本発明に係るエチレン系重合体組成物は、熱可塑性樹脂に配合されることによって、耐衝撃性と硬度とのバランスに優れた熱可塑性樹脂組成物が得られる。

【0061】本発明に係る熱可塑性樹脂組成物は、耐衝撃性と硬度とのバランスに優れている。

#### 【0062】

【実施例】以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

【0063】なお、本明細書において組成物の物性の測定は以下のようにして行った。

#### 曲げ弾性率(FM)

ASTM C790に準拠して、厚さ1/8インチの試験片を用いて、スパン間51mm、曲げ速度20mm/分の条件下で測定した。

#### 【0064】アイゾット衝撃試験(IZ)

ASTM D256に準拠して、厚さ1/4インチの試験片(後ノッチ)を用いて、23℃で測定した。

#### 【0065】ロックウェル硬度(HR)

ASTM D785に準拠して、厚さ2mm×縦120mm×横130mmの角板を用いて測定した。

#### 【0066】

【実施例1】密度が $0.886\text{g/cm}^3$ 、190℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレート(MFR<sub>190</sub>)が4g/10分、示差走査型熱量計により測定した吸熱曲線における最大ピーク位置の温度(T<sub>m</sub>)が71.8℃であるエチレン・ブテン共重合体(A-1)100重量部に対して、表面ビニルシラン変性シリカ微粒子(粒径:100Å、ビニルシラン量:0.3g/cm<sup>2</sup>(シリカ微粒子表面積))10重量部と、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキサン0.05重量部と、ジビニルベンゼン10重量部とを配合し、押出機で230℃で熔融混練することにより、エチレン・ブテン共重合体組成物(E-1)を調製した。

【0067】得られたエチレン・ブテン共重合体組成物

(G-1)20重量部と、230℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレート(MFR<sub>230</sub>)が10g/10分であり、64℃デカン可溶成分の量が0.4重量%、64℃デカン不溶成分の量が99.6重量%、64℃デカン不溶成分のペンタッドアイソタクティシティー(mmmm分率)が0.982であるホモポリプロピレン(H-1)；80重量部とを混練して、熱可塑性樹脂組成物を調製し、成形したのち、得られた成形品について、曲げ弾性率、アイゾット衝撃試験、ロックウェル硬度を測定した。結果を表1に示す。

#### 【0068】

【実施例2】実施例1において、エチレン・ブテン共重合体(A-1)の代わりに、密度が $0.887\text{g/cm}^3$ 、190℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレート(MFR<sub>190</sub>)が4g/10分、示差走査型熱量計により測定した吸熱曲線における最大ピーク位置の温度(T<sub>m</sub>)が83.8℃であるエチレン・オクテン共重合体(A-2)を使用した以外は、実施例1と同様にしてエチレン・オクテン共重合体組成物(G-2)を調製した。

【0069】得られたプロピレン系重合体組成物(G-2)；20重量部と、ホモポリプロピレン(H-1)80重量部とを混練して、熱可塑性樹脂組成物を調製し、成形したのち、得られた成形品について、実施例1と同様に、曲げ弾性率、アイゾット衝撃試験、ロックウェル硬度を測定した。結果を表1に示す。

#### 【0070】

【実施例3】実施例1で用いたホモポリプロピレン(H-1)；40重量部と、230℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレート(MFR<sub>230</sub>)が22g/10分、64℃デカン可溶成分の量が10.8重量%、64℃デカン不溶成分の量が89.2重量%、64℃デカン不溶成分のペンタッドアイソタクティシティー(mmmm分率)が0.978であるプロピレンブロック共重合体(H-2)；44重量部と、実施例2で調製したエチレン・オクテン共重合体組成物(G-2)；16重量部とを混練して熱可塑性樹脂組成物を調製した。

【0071】得られた熱可塑性樹脂組成物について、実施例1と同様に、成形し、得られた成形品について、曲げ弾性率、アイゾット衝撃試験、ロックウェル硬度を測定した。結果を表1に示す。

#### 【0072】

【実施例4】実施例1で用いたホモポリプロピレン(H-1)；40重量部と、230℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレート(MFR<sub>230</sub>)が22g/10分、64℃デカン可溶成分の量が10.8重量%、64℃デカン不溶成分の量が89.2重量%、64℃デカン不溶成分のペンタッドアイソタクティシティー(mmmm分率)が0.978であるプロピレンブロック共重合体(H-2)；44重量部と、実施例2で調製したエチレン・オクテン共重合体組成物(G-2)；16重量部と、結晶核剤(Na-2,2'-メチレン-ビス(4,6-ジ-tert-ブチルフェニル)フォスフェート)；1重量部とを混練して熱可塑性樹脂組成物を調製した。

【0073】得られた熱可塑性樹脂組成物について、実施例1と同様に、成形し、得られた成形品について、曲げ弾性率、アイゾット衝撃試験、ロックウェル硬度を測定した。結果を表1に示す。

【0074】

【実施例5】実施例1で用いたホモポリプロピレン(H-1)；40重量部と、230℃、2.16kg荷重におけるメルトフローレート(MFR<sub>230</sub>)が2.2g/10分、64℃デカン可溶成分の量が10.8重量%、64℃デカン不溶成分の量が89.2重量%、64℃デカン不溶成分のペンタッドアイソタクティシティー(mmm分率)が0.978であるプロピレンブロック共重合体(H-2)；4.4重量部と、実施例2で調製したエチレン・オクテン共重合体組成物(G-2)；16重量部と、無機充填剤(タルク)；2重量部とを混練して熱可塑性樹脂組成物を調製した。

表1

(重量部)		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1
ブ レ ン ド 原 料	ホモポリプロピレン(H-1)	80	80	40	40	40	80
	プロピレンブロック共重合体(H-2)			44	44	44	
	エチレン・ブテン共重合体組成物(G-1) エチレン・ブテン共重合体(A-1) 100重量部 表面ビニルシラン変性シリカ 10重量部 架橋剤 0.05重量部 架橋助剤 0.1重量部	20					
	エチレン・オクテン共重合体組成物(G-2) エチレン・オクテン共重合体(A-2) 100重量部 表面ビニルシラン変性シリカ 10重量部 架橋剤 0.05重量部 架橋助剤 0.1重量部		20	16	16	16	
	結晶核剤				1		
	無機充填剤(タルク)					2	
	エチレン・オクテン共重合体(A-2)						20
曲げ弾性率 (MPa)		1560	1580	1510	1560	1565	1540
アイゾット衝撃強度 (J/m)		85	80	114	160	140	69
ロックウェル強度		90	89	87	89	90	88.5

架橋剤：2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキサジ  
架橋助剤：ジビニルベンゼン

結晶核剤：Na-2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-tert-ブチルフェニル)フォスフェート

【0075】得られた熱可塑性樹脂組成物について、実施例1と同様に、成形し、得られた成形品について、曲げ弾性率、アイゾット衝撃試験、ロックウェル硬度を測定した。結果を表1に示す。

【0076】

【比較例1】実施例1で用いたエチレン・ブテン共重合体(A-1)；20重量部と、実施例1で用いたホモポリプロピレン(H-1)；80重量部とを混練して熱可塑性樹脂組成物を調製した。

【0077】得られた熱可塑性樹脂組成物について、実施例1と同様に、成形し、得られた成形品について、曲げ弾性率、アイゾット衝撃試験、ロックウェル硬度を測定した。結果を表1に示す。

【0078】

【表1】